

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 64-045716

(43)Date of publication of application : 20.02.1989

(51)Int.Cl.

C01F 5/02

C08K 9/02

C08K 9/02

(21)Application number : 62-201861

(71)Applicant : ASAHI GLASS CO LTD

(22)Date of filing : 14.08.1987

(72)Inventor : NAKAYA KEIICHI
TANAKA KUNIO

(54) MAGNESIUM OXIDE POWDER

(57)Abstract:

PURPOSE: To contrive to improve hydration resistance while keeping high thermal conductivity of magnesium oxide of its own, by coating the surface of magnesium oxide powder with a substance containing an aluminum oxide component.

CONSTITUTION: The surface of magnesium oxide powder is coated with a substance containing an aluminum oxide component. The thickness of a coating layer is 0.01W1 μ m and the average particle diameter of the magnesium oxide powder having the surface coated with a substance containing an aluminum oxide component is preferably 5W500 μ . Most of magnesium oxide is preferably periclase type and most of the substance containing an aluminum oxide component is preferably spinel with respect to chemical stability. The magnesium oxide powder is suitable as a filler for semiconductor sealing polymer a sheathed heater filler.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭64-45716

⑮ Int.Cl.⁴

C 01 F 5/02
C 08 K 9/02

識別記号

CAM
KCN

庁内整理番号

6939-4G

⑬ 公開 昭和64年(1989)2月20日

A-6845-4J 審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

⑭ 発明の名称 酸化マグネシウム粉末

⑯ 特 願 昭62-201861

⑰ 出 願 昭62(1987)8月14日

⑱ 発 明 者 中 矢 圭 一 千葉県千葉市真砂2-23

⑲ 発 明 者 田 中 邦 男 千葉県市原市下野442-21

⑳ 出 願 人 旭硝子株式会社 東京都千代田区丸の内2丁目1番2号

㉑ 代 理 人 弁理士 内 田 明 外3名

明 細 書

1. 発明の名称

酸化マグネシウム粉末

2. 特許請求の範囲

- (1) 酸化アルミニウム成分を含む物質で表面が被覆された酸化マグネシウム粉末。
- (2) 酸化アルミニウム成分を含む物質がスピネルである特許請求の範囲第1項記載の酸化マグネシウム粉末。
- (3) 酸化マグネシウムがペリクレーズである特許請求の範囲第1項および第2項記載の酸化マグネシウム粉末。
- (4) 被覆層の厚さは0.01 μ m \sim 1 μ mである特許請求の範囲第1 \sim 3項記載の酸化マグネシウム粉末。
- (5) 酸化アルミニウム成分を含む物質で表面が被覆された酸化マグネシウム粉末の平均粒径が5 \sim 500 μ mである特許請求の範囲第1 \sim 4項記載の酸化マグネシウム粉末。

3. 発明の詳細な説明

〔産業上の利用分野〕

本発明は、半導体封止樹脂用フィラーやシーズヒーター充填材などに用いられる高熱伝導性の酸化マグネシウム粉末に関するものである。

〔従来技術〕

従来、半導体素子封止用樹脂のフィラーとして結晶シリカが使用されている。しかし、シリカは熱伝導性が低いため半導体素子の高集積化、高電力化、高速化に伴う発熱量の増大に十分な対応が困難になってきた。こうした熱的問題を解決するために、フィラーとして熱伝導性がシリカより良好な酸化マグネシウムを使用することが提案されている。

また、シーズヒーター等に用いる電気絶縁性充填材料として、電気絶縁性および高熱伝導性の両方を満足する材料である、焼結マグネシアや電磁マグネシアなどの酸化マグネシウム粉末が使用されている。

〔発明の解決しようとする問題点〕

しかしながら、酸化マグネシウムは、水和して水酸化マグネシウムに変化し易く、その結果電気絶縁性が低下したり、樹脂に充填した際には水和による体積膨張により樹脂にクラックが生じたり樹脂の強度が低下するという問題点を有している。

他方、酸化マグネシウムの水和による問題を改善する方法として、酸化マグネシウムの表面を有機化合物（たとえばオキシソル類）または無機化合物（たとえば、 $MgO \cdot nH_2O$ 、 SiO_2 ）で被覆する方法が提案されている。しかし、いずれの方法によっても、酸化マグネシウム本来の高熱伝導性を保持したまま周便に必要な充分な程度にまで耐水和性を改善することは困難であった。

一方、本出願人は酸化マグネシウム中に酸化アルミニウムを5〜30wt%均一に分散させることにより酸化マグネシウムのもつ優れた熱伝導性を損なうことなく耐水和性を著しく改良でき

シウムの全表面に形成されている場合は、耐水和性が効果的に向上し得るので好ましいが、酸化マグネシウムの表面が一部分露出しているも耐水和性が改善される。

被覆層の厚さは $0.01\mu m \sim 1\mu m$ であることが好ましい。 $0.01\mu m$ 未満の場合は耐水和性が充分に向上しない恐れがあり、 $1\mu m$ を超える場合は、それ以上耐水和性が大きく改善されず、かえって熱伝導度が低くなったり、硬度が高くなる恐れがありそれぞれ好ましくない。

本発明の酸化マグネシウム粉末は、以下のような方法で製造することができる。例えば、酸化マグネシウム粉末を、アルミナゾル等のアルミナのコロイド溶液もしくはアルミニウムトリ- α -ブトキシド等の有機アルミニウム化合物溶液に浸漬しよく攪拌して、酸化マグネシウムの表面にアルミニウム化合物を吸着させておき、乾燥焼成して、表面に $MgO \cdot Al_2O_3$ 系化合物を形成させる方法、あるいは酸化マ

グネシウム粉末にアルミナを溶射する方法である。

ることを見出し、特願昭62-142259として提案した。しかしながら、この方法は、酸化アルミニウムを比較的多量に添加しなければならず、また酸化マグネシウム中に酸化アルミニウムを均一に分散させるために、造粒、焼結という煩雑な工程が必要であり、結果的に経費がかかるなどの問題点を有していた。

〔問題点を解決するための手段〕

本発明者は、酸化マグネシウムの耐水和性を改善して、高熱伝導性でかつ耐湿性に優れた無機粉体を得ることを目的として種々研究・検討した結果、酸化マグネシウムの表面のみをアルミニウム化合物で処理することにより上記目的を達成し得ることを見出した。

かくして本発明は、酸化アルミニウムを含む物質で表面が被覆された酸化マグネシウム粉末を提供するにある。

本発明において、酸化マグネシウム粉末の表面は酸化アルミニウムを含む化合物で被覆されていなければならない。被覆層は、酸化マグネ

シウム粉末にアルミナを溶射する方法である。

本発明において、酸化マグネシウムは大部分ベリクレーヌ型、酸化アルミニウム成分を含む物質は大部分スピネルであるのが化学的安定性などの点で好ましい。

本発明において、酸化アルミニウム成分を含む物質で表面が被覆された酸化マグネシウム粉末は、平均粒径が $5\mu m$ 以上 $500\mu m$ 以下であることが望ましい。粉末の平均粒径が $5\mu m$ に満たない場合は比表面積が増大し、表面を被覆しても酸化マグネシウムが水和し易くなる恐れがある。また、粒径が $500\mu m$ 以上の場合は、粒体の充填性が悪化して、充填材としての実用性が低下する恐れがある。

〔実施例〕

実施例1

高純度水酸化マグネシウムを、 $1300^\circ C$ にて4時間焼成して酸化マグネシウム粉末を得た。この粉末を水を溶媒とするアルミナゾル(Al_2O_3 、

分 2wt%) に10分間浸漬攪拌した後濾別し乾燥した。次に、これを1400℃で2時間焼成して、表面に $MgO \cdot Al_2O_3$ 系化合物を被覆した酸化マグネシウム粉末を得た。この粉末の平均粒径は $15\mu m$ であった。SEM観察によると表面被覆層の厚さは $0.2 \sim 0.5\mu m$ でX線回折によるとこの表面層はスピネル($MgO \cdot Al_2O_3$)を主としたものであり、酸化マグネシウムはペリクレス型のものであった。得られた粉末について、以下のような物性を測定し結果を第1表に示した。

(水和率)

試料粉末 10gを、100mlの沸騰水に攪拌しながら10分間浸漬後、冷却のために冷水100mlを加えて直ちに粉末を濾過した。この粉末をアセトンで洗浄後、120℃で乾燥させて、測定用試料を作成した。

この試料について1000℃、20分の強熱処理の前後の重量を測定し次式により水和率を求めた。

(耐湿性)

上記、熱伝導率の測定に用いたコンパウンド試料について、プレッシャークッカーテスト(120℃ 2気圧水蒸気中に200時間保持)を行った。その後、コンパウンドの外観を観察した。

実施例2

水酸化マグネシウムを焼成して作った酸化マグネシウム粉末の代わりに電磁マグネシアを用いた以外は実施例1と同様にして、表面を酸化アルミニウムを含む物質で被覆した酸化マグネシウム粉末を作製した。この粉末の平均粒径は $115\mu m$ で被覆層の厚さは $0.2 \sim 0.5\mu m$ であった。また、被覆層の大部分はスピネルであり、酸化マグネシウムはペリクレス型であった。この粉末について実施例1と同様の物性を測定した。結果を第1表に示す。

比較例1

実施例1で用いた表面処理を施していない酸化マグネシウム粉末について、実施例1と同様の物性を測定した。結果を第1表に示す。

$$\text{水和率} = ((A - B) / B) \times 100\%$$

A: 強熱処理前重量

B: 強熱処理後重量

(熱伝導率)

上記酸化マグネシウム粉末をエポキシシランカップリング剤で処理したもの100部に対してノボラックエポキシ20部、ノボラックフェノール10部、硬化促進剤0.4部およびカルナバワックス0.4部を加えて90~95℃に設定した二本ロールミキサーで混練後、これを微粉砕した。得られた複合微粉末を170℃で10分間プレス成形し、さらに170℃、5時間のポストキュアを行って直径100mm厚さ5mmの試験片を得た。この試験片について熱伝導率を測定した。

(体積抵抗)

上記、熱伝導率の測定に用いたコンパウンド試料について、ASTM D-257に準拠し直流電圧100V、電圧印加後1分後の体積抵抗を測定した。

比較例2

実施例2で用いた表面処理を施していない電磁マグネシア粉末について、実施例1と同様の物性を測定した。結果を第1表に示す。

第1表

	水和率 [%]	熱伝導率 [cal/cm· sec·℃]	体積抵抗 (常温) [Ω·cm]	プレッシャー クッカーテス ト後の外観
実施例1	0.2	45×10^{-4}	3.8×10^{10}	異常なし
実施例2	0.1	44×10^{-4}	3.8×10^{10}	異常なし
比較例1	2.7	49×10^{-4}	3.9×10^{10}	無数のひび割れ、一部粉化
比較例2	0.7	49×10^{-4}	3.8×10^{10}	無数のひび割れ

〔発明の効果〕

本発明の粉末は、酸化マグネシウムが本来有している優れた熱伝導性、電気絶縁性を損なうことなく耐水和性が著しく改善されているので、半導体封止樹脂用フィラーやシーズヒーター用充填材として好適に用いることができる。また、酸化マグネシウムの硬度を増大させないから、特に樹脂用フィラーに使用した場合には樹脂成形品の研削加工が容易で、金型等の損耗も少ない。

本発明による粉末では、表面にのみ酸化アルミニウムを含む層があるので酸化アルミニウムの使用量が少なくても耐水性の向上に高い効果を有する。また製造にも特別煩雑な工程を必要としないので、全体としてコストが低くなる。

代理人(弁護士) 内田 明
代理人(弁護士) 萩原 亮一
代理人(弁護士) 安西 篤夫
代理人(弁護士) 平石 利子

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第1区分

【発行日】平成7年(1995)4月11日

【公開番号】特開平1-45716

【公開日】平成1年(1989)2月20日

【年通号数】公開特許公報1-458

【出願番号】特願昭62-201861

【国際特許分類第6版】

C01F 5/02 9040-4G

C08K 3/22 KAE 7242-4J

9/02 KCN 7242-4J

手続完了通知書

平成 6年 7月29日

特許庁長官 殿

1. 事件の表示 昭和62年特許第201861号
2. 発明の名称 酸化マグネシウム粉末
3. 補正をする者
事件との関係 特許出願人
住 所 東京都千代田区丸の内二丁目1番2号
名 称 (004) 旭硝子株式会社
4. 代理人
住 所 〒105 東京都港区虎ノ門一丁目16番2号 虎ノ門千代田ビル
氏 名 弁護士(7179) 内田 明
5. 補正命令の日付 自発補正
6. 補正により増加する発明の数 なし
7. 補正の対象
明細書の特許請求の範囲の欄および発明の詳細な説明の欄
8. 補正の対象
(1) 明細書の特許請求の範囲を別紙のとおり補正する。
(2) 明細書第4頁第15～20行の「かくして本発明は、……ならない。」を次のように訂正する。
「本発明は、表面に、酸化アルミニウム成分を含む物質からなる被覆層を有する酸化マグネシウム粉末を提供するものである。
ここで、酸化アルミニウム成分を含む物質とは、組成的にアルミニウムを含有する酸化物系化合物である。具体的には、酸化アルミニウム単独またはアルミニウムと他の金属元素との複合酸化物、あるいはこれらの2種以上の混合物をいう。特に、 $H_2O-Al_2O_3$ 系化合物が好ましい。」
(3) 明細書第9頁第3行の「テスト」を「ナスト」に訂正する。

(別紙)

特許請求の範囲

1. 表面に、酸化アルミニウム成分を含む物質からなる被覆層を有する酸化マグネシウム粉末。
2. 酸化アルミニウム成分を含む物質がスピネルである特許請求の範囲第1項記載の酸化マグネシウム粉末。
3. 酸化マグネシウムがペリクレーズである特許請求の範囲第1項または第2項記載の酸化マグネシウム粉末。
4. 被覆層の厚さは $0.01\mu m \sim 1\mu m$ である特許請求の範囲第1～3項記載のいずれかの酸化マグネシウム粉末。
5. 平均粒径が $5 \sim 500\mu m$ である特許請求の範囲第1～4項記載のいずれかの酸化マグネシウム粉末。